### 、特許協力条約に基づく国際

#### 願

<b>幽際出順番号</b>	す庁配入#W ────────────────────────────────────	
國際出順日	PCT	
(受付印)	受領印	
出版人又は代理人の登録記号	ED2253PCT	

出願人は、この国際出願が特許協力条	(受付印)	受領印
的に従って処理されることを <b>調求する。</b>	出類人又は代理人の音類配号 (希望する場合、最大 1 2 字)	FP2353PCT
第 1 棡 発明の名称 組成物、その組成物を用いた低誘電率 その低誘電率膜を有する電子部品	膜の形成方法、低誘電	了率膜及び
②宮 II 相図   日出 別道 人 氏名(名称)及びあて名:(佐・名の順に記載:佐人は公式の完全な名称を記載	; あて名は郵便番号及び国名も記載)	この欄に記載した者は、
日立化成工業株式会社		起語示号:
HITACHI CHEMICAL CO., LTD.		
〒163-0449 日本国東京都新宿区西新宿二丁日 1-1, Nishishinjuku 2-chome, Shinjuku-ku, T		ファクシミリ番号:
*		加入電信番号:
BE (BA): 日本国 JAPAN	住所 (图名): 日本国	JAPAN
The second secon	除くすべての指定国 米国の	み 追記欄に記載した指定国
第田欄 その他の出願人又は発明者		·
成田 武憲 NARITA Takenori	な; あて名は鄭俊帝号及び国名も記載)	この棚に記載した者は 次に該当する: 出願人のみである。
〒317-0061 日本国茨城県日立市東町4-2-	- 9 山崎寮 1 2 9 号室	✓ 出版人及び発明者である。
Yamazaki-ryo 129, 2-9, Higashi-cho 4-chome 317-0061 JAPAN	e, Hitachi-shi, Ibaraki	発明者のみである。 (ここにレ印を付したとき は、以下に記入しないこと)
<b>節度 (原名)</b> : フェーラ エムアムン	住所 (图名): 日本「	国 JAPAN
	と除くすべての指定国	
指定国についての出版人である:		
第17個 代理人又は非通の代表者、通知	のあて名	
次に記載された者は、国際機関において出願人のために行動する:	✓ 代理人	共通の代表者
氏名(名称)及びあて名:(姓・名の斯に記載:佐人は公式の完全な名称を記る	確;あて名は郵便番号及び国名も記載)	<b>礼話寄号</b> :
7866 弁理士 津国 肇 TSU	KUNI Hajime	03-3502-7213
〒105-0001 日本国東京都港区虎ノ門1丁目:	2 2 番 1 2 号	ファクシミリ番号:
	AX TS LN	03-3502-7218
SVAX TS Bldg., 22-12, Toranomon 1-chome, Minato-ku, Tok	yo 105-0001 JAPAN	加入電信雷号:
通知のためのあて名:代理人又に共通の代表者が遺任されておらず、上	記枠内に特に通知が送付されるあて名を	記載している場合は、レ印を付す。

第四個の統合 その他の出 人又は発明		
この反驳を使用しないときは、この		
氏名(名称)及びあて名:(姓・名の前に記載:佐人に公式の完全な名称を記載;	あて名は郵便計号及び国名も記載)	この側に記載した者は、 次に該当する:
森 嶋 浩 之 MORISIMA Hiroyuki		出版人のみである。
〒319-1417 日本国茨城県日立市かみあい町2-	-19-3	・ 出版人及び発明者である。
19-3, Kamiai-cho 2-chome, Hitachi-shi, Ibarak	i 319-1417 JAPAN	
		型型を明者のみである。 (ここにレ印を付したとき は、以下に起入しないこと)
图55 (图名): 日本国 JAPAN	住所 (图名): 日本国	JAPAN
この概に記載した省は、次の すべての指定国 米国を粉	くすべての指定国 🗸 米国のみ	追記側に記載した指定国
指定国についての出版人である:	あて名は郵便番号及び国名も記載)	この概に記載した者は、
野 部 茂 NOBE Shigeru		次に該当する:
   〒316-0032 日本国茨城県日立市西成沢町3-2	21-2-402	出版人のみである。
		✓ 出版人及び発明者である。
21-2-402, Nishinarusawa-cho 3-chome, Hitach	i-shi, Ibaraki	
316-0032 JAPAN		・
		(ここにレ印を付したとき は、以下に起入しないこと)
- 1,		
日本国 JAPAN	住所(四名): 日本国	JAPAN
この欄に記載した者は、次の 一つ ニーラ		
オペイの投が順   火砲を除	くすべての指定国 🗸 米国のみ	追記棚に記載した指定国
		追記機に記載した指定国 この棚に記載した者は、 次に該当する:
指定国についての出版人である: すべての指定国 米国を除		この欄に記載した者は、
指定国についての出版人である: すべての指定国 米国を除 氏名(名称)及びあて名: (姓・名の順に記載: 佐人は公式の完全な名称を記載:	あて名は郵便番号及び国名も記録)	この欄に紀載した名は、次に該当する:
#定国についての出版人である:	めて名は単純新号及び四名も記載) ) 山崎寮131号室	この棚に紀載した者は、 次に該当する:
# 特定国についての出版人である:	めて名は単純新号及び四名も記載) ) 山崎寮131号室	この棚に紀載した者は、 次に該当する: 出版人のみである。
#定国についての出版人である:	めて名は単純新号及び四名も記載) ) 山崎寮131号室	この棚に紀載した者は、 次に該当する: 出額人のみである。
# 特定国についての出版人である:	めて名は単純新号及び四名も記載) ) 山崎寮131号室	この棚に紀載した者は、 次に該当する: 出版人のみである。
#定国についての出版人である:	かて名は氰硬素号及び四名も記載) )山崎寮131号室 Hitachi-shi, Ibaraki	この棚に紀載した者は、 次に該当する:  出願人のみである。  以 出願人及び発明者である。  発明者のみである。  (ここにレ印を付したとき は、以下に記入しないこと)
# 情定国についての出版人である:	めて名は単純新号及び四名も記載) ) 山崎寮131号室	この棚に紀載した者は、 次に該当する: 出額人のみである。
# 情定国についての出版人である:	あて名は類岐番号及び四名も記載)  山崎寮131号室  Hitachi-shi, Ibaraki  住所(四名): 日本国  〈ナベての指定図 V 米四のみ	この棚に紀載した者は、 次に該当する:  出願人のみである。  以 出願人及び発明者である。  発明者のみである。  (ここにレ印を付したとき は、以下に記入しないこと)
# 情定国についての出版人である:	あて名は類岐番号及び四名も記載)  山崎寮131号室  Hitachi-shi, Ibaraki  住所(四名): 日本国  〈ナベての指定図 V 米四のみ	この欄に記載した者は、 次に該当する:      出版人のみである。      シ明着のみである。     (ここにレりを付したとき は、以下に起入しないこと)
# 情定国についての出版人である:	あて名は類岐番号及び四名も記載)  山崎寮131号室  Hitachi-shi, Ibaraki  住所(四名): 日本国  〈ナベての指定図 V 米四のみ	この欄に記載した者は、 次に該当する:  出願人のみである。  「出願人及び発明者である。  発明者のみである。 (ここにレ印を付したとき は、以下に記入しないこと)  JAPAN  追記棚に記載した指定国
# 情定国についての出版人である:	あて名は類岐番号及び四名も記載)  山崎寮131号室  Hitachi-shi, Ibaraki  住所(四名): 日本国  〈ナベての指定図 V 米四のみ	この欄に記載した者は、 次に該当する:      出版人のみである。      シ明着のみである。     (ここにレりを付したとき は、以下に起入しないこと)
#	あて名は鄭便泰号及び四名も記載)  山崎寮 1 3 1 号室  Hitachi-shi, Ibaraki  住所 (四名): 日本国  くすべての指定国 V 米国のみ  あて名に鄭便泰号及び回名も記載)	この欄に記載した者は、 次に該当する:  出願人のみである。  ・ 出願人及び発明者である。 ・ (ここにレ印を付したときは、以下に起入しないこと)  ・ は、以下に起入しないこと)  ・ は、以下に起入しないこと)  ・ は、以下に記載した指定国 ・ この間に記載した者は、 次に該当する:
#	### 1 3 1 号室    山崎寮 1 3 1 号室   Hitachi-shi, Ibaraki    住所 (四名) : 日本国   (すべての指定国   V 米国のみ  あて名に類便変が及び回名も記載)   山崎寮 3 0 3 号室	この欄に紀載した者は、 次に該当する:  出願人のみである。  ・ 出願人及び発明者である。 ・ (ここにレロを付したとき は、以下に記入しないこと)
# 特定国についての出版人である:	### 1 3 1 号室    山崎寮 1 3 1 号室   Hitachi-shi, Ibaraki    住所 (四名) : 日本国   (すべての指定国   V 米国のみ  あて名に類便変が及び回名も記載)   山崎寮 3 0 3 号室	この欄に記載した者は、次に該当する:
#	### 1 3 1 号室    山崎寮 1 3 1 号室   Hitachi-shi, Ibaraki    住所 (四名) : 日本国   (すべての指定国   V 米国のみ  あて名に類便変が及び回名も記載)   山崎寮 3 0 3 号室	この欄に紀載した者は、 次に該当する:  出願人のみである。  ・ 出願人及び発明者である。 ・ (ここにレロを付したとき は、以下に記入しないこと)
#	AT名に郵便番号及び四名も記載)  山崎寮 1 3 1 号室  Hitachi-shi, Ibaraki  住所 (四名): 日本国  (十へての指定圏 V 米国のみ  あて名に郵便番号及び回名も記載)  山崎寮 3 0 3 号室  Hitachi-shi, Ibaraki	この欄に紀載した者は、 次に該当する:  出願人のみである。  ・ 出願人及び発明者である。 ・ (ここにレロを付したとき は、以下に記入しないこと)
株式国についての比較人である:	AT名に郵便番号及び四名も記載)  山崎寮 1 3 1 号室  Hitachi-shi, Ibaraki  住所 (四名): 日本国  (十へての指定圏 V 米国のみ  あて名に郵便番号及び回名も記載)  山崎寮 3 0 3 号室  Hitachi-shi, Ibaraki	□ この欄に記載した名は、 次に該当する: □ 出願人のみである。 □ 発明者のみである。 (ごこにレロを付したとき) □ 近記棚に記載した指定国 □ この欄に記載した名は、次下に該当する: □ 出顧人のみである。 □ 出顧人のみである。 □ 上版人及び発明者である。 □ 発明者のみである。 (ごこにレ印を付したとき) □ は、以下に起入しないことと)
株式田についての比較人である:	AT名に郵便番号及び回名も記載)  山崎寮 1 3 1 号室  Hitachi-shi, Ibaraki  住所 (回名): 日本国  〈すべての指定国 V 米国のみ  あて名に郵便番号及び回名も記載)  山崎寮 3 0 3 号室  Hitachi-shi, Ibaraki  住所 (回名): 日本国	この欄に記載した者は、次に該当する:

様式PCT/RO/101 (模獎)

(1998年7月: 西版2000年1月)

THIS PAGE BLANK (USF

2	
<u>ی</u>	百

第四欄の続き その他	上の出人又は	は発明省			
この校奨を使用しないときは、この用紙を踏むに含めないこと。					
氏名(名称)及びあて名: (姓・名の順に記載: 法人は公式の完全な名称を記載: あて名は郵便番号及び国名も記載) この間に記載した者は、 次に該当する:					
寺 田 信 子	TERADA Nobu	ko		•	出船人のみである。
〒316-0006 日本国茨	城県日立市末広町	ŋ 2 - 3 -	1 6		出額人及び発明者である。
3-16, Suehiro-cho 2-c	home, Hitachi-s	hi, Ibaraki	316-0006 JAP	PAN	乗引者のみである。 (ここにレ印を付したとき は、以下に起入しないこと)
D + F	TADANT .		生所 <i>(国名)</i> :	日本国 J	 APAN
国語 (图名): 日本国	JAPAN				
この期に記載した者は、次の 指定国についての出領人である:	すべての指定国		すべての指定国	✓ 米国のみ	追記機に記載した指定国
氏名(名称)及びあて名:(統・名の順に	記載:佐人は公式の完全	《名称长記····································	5 て名は鄭使寄り及び国	名も起戦)	この棚に記載した者は、 次に該当する:
	•				出版人のみである。
					出願人及び発明者である。
					型明者のみである。 (ここにレ印を付したとき は、以下に記入しないこと)
		·			<u> </u>
国籍(四名):	· .		住所 <i>(四名)</i> :		
この間に記載した者は、次の	すべての指定国	米国を除く	くすべての指定国	黒国のみ	追記機に記載した指定国
措定国についての出版人である: 氏名 (名称) 及びあて名: (姓・名の順)	こ記載:佐人は公式の完全	公名称《記載: 。	ちて名は郵便番号及び国	(名书记载)	この脚に記載した者は、 次に該当する:
					出願人のみである。
	·				出願人及び発明者である。
	•	* .			売明者のみである。 (ここに <i>レ印をけしたとき</i> は、以下に起入しないこと)
			· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		
国足 <i>(国名)</i> :			住所 (四名):		
この機に記載した者は、次の 指定国についての出願人である:	すべての指定国		くすべての指定国	米国のみ	追記欄に記載した指定国
氏名 (名称) 及びあて名: (姓・名の順)	に記載:在人は公式の完全	公名称を記載;	あて名は郵便電舟及び国	[名も記載]	この間に記載した者は、 次に接当する:
	•				出顧人のみである。
					出版人及び発明者である。
					・
國第 <i>(图名)</i> :			住所 (图名):		
. この間に記載した者は、次の	すべての指定国	本国を旅	」 くすべての指定国	米国のみ	追記側に記載した指定国
指定間についての出版人である:					
様式PCT/RO/101 (続葉)	提奨に記載されている。  (1998年7月: 再版2)	000年1月)			
general / RO/ 101 (就業)	(, J J J - F - M - HIM -				

THIS PAGE BLANK (115

会等 マ 相関	「劉 クラ 宇宙 万三 の規定に基づき次の指定を行う(ば当) コにレ印を付すこと: 少り	なくとも1つの日にと印を付する)。
广大城华南		
AP	MVV マラウイ Malavi. S D スーダン Sudan. S L : タンザニア United Republic of Tanzania. U C ウガンダ Uga 統約国である他の国	M ガンピア Gambia、IK E ケニア Kenya、L S レソト Lesotho、 シエラ・レオーネ Sierra Leone、S Z スワジランド Swaziland、T Z Inda、Z W ジンパブエ Zimbabwe、及びハラレブロトコルと特許協力条約の
	K G キルギス Kyrgyzstan, IK Z カザフスタン Kazakhst Federation, T J タジキスタン Tajikistan, T M トルタ である他の国	A Z アゼルバイジャン Azcrbaijan. B Y ベラルーシ Belarus, tan, MID モルドヴァ Republic of Moldova. JR U コシア Russian クメニスタン Turkmenistan, 及びユーラシア特許条約と特許協力条約の締約値
· .	シュタイン Switzerland and Liechtenstein, C マキプロス (スペイン Spain, F I フィンランド Finland, F R フ I E アイルランド Ireland, I T イタリア Italy, L ング Netherlands, P Tポルトガル Portugal, S E スウェ	a. B E ベルギー Belgium. C I-I and L I スイス及びリヒテン Cyprus. D E ドイツ Germany. D K デンマーク Denmark. E S ランス France. G B 英国 United Kingdom. G R キリシャ Greece. U ルクセンブルグ Luxembourg. M C モナコ Monaco. N I オラ ニーデン Sveden. 及びヨーロッパ特許条約と特許協力条約の締約国である他の国
	Republic, C G コンゴー Congo, C I コートジボアール ON ギニア Guinca, C W ギニア・ビサオ Guinea-Bist	a Faso, B J ベナン Benin, C F 中央アフリカ Central African ル Côted' Ivoire, C M カメルーン Cameroon, G A ガポン Gabon, sau, MIL マリ Mali, M R モーリタニア Mauritania, N E ・Chad, T G トーゴー Togo, 及びアフリカ知的所有機機構のメンバー国と 水める場合には点象上に記載する)
国内特督	〒(他の種類の保護又は収扱いを求める場合には点線上に記載する)	
	アラブ首長国連邦 United Arab Emirates	LR リベリア Liberia
□ A L	アルバニア Albania	L S レント Lesotho
□ AM	アルメニア Armenia	L T リトアニア Lithuania
□ A T	オーストリア Austria	L U ルクセンブルグ Luxembourg
_	オーストラリア Australia	L V ラトヴィア Latvia
	アゼルバイジャン Azerbaijan	MA FDyD Morocco
BA	ボスニア・ヘルツェゴヴィナ Bosnia and Herzegovina	MD ENFOY Republic of Moldova
		MIK マケドニア旧ユーゴースラヴィア共和国 The former Yugoslav
	バルバドス Barbados	MIK マケドニア旧ユーコースフライノ共和国 ine former jugoslav Republic of Macedonia
H플을	ブルガリア Bulgaria・・・・・	MN tyjh Mongolia
	ブラジル Brazil	MW v594 Malavi
	ベラルーシ Relarus	MX x +>> Hexico
	カナダ Canada	NO /-n/j=- Norvey
	and L I スイス及びリヒテンシュタイン Svitzerland and Liechtenstein	N Z = a - · · · · - 5 · · F Nev Zealand
		PL #-5v F Poland
· ·	中国 China	PT #N-11N Portugal
	コスタリカ Costa Rica	RO N-7=7 Romania
	キューバ Cuba チェッコ Czech Republic	RU =>7 Russian Federation
	デエッコ Czech Kepublic ドイツ Germany	SD 2-42 Sudan
	デンマーク Denmark	SE スウェーデン Sweden
==	ドミニカ Dominica	SG シンガポール Singapore
	エストニア Estonia	S I ADÖz=7 Slovenia
	スペイン Spain	SK ZDÖT FT Slovakia
	フィンランド Finland	S L シェラ・レオーネ Sierra Leonc
	ブインフンド Finjano	T J タジキスタン Tajikistan
	グレナダ Grenada	T M トルグメニスタン Turkmenistan
	グルジア Georgia	TR   TR   Turkey
	ガーナ Ghana	T T トリニダッド・トバゴ Trinidad and Tobago
	ガンビア Gambia	T Z タンザニア United Republic of Tunzania
	クロアチア Crontia	□ U A ウクライナ Ukraine
	ハンガリー Hungary	UG ウガンダ Uganda
	インドネシア Indonesia	☑ U S 米国 United States of America
	イスラエル Israel	
	インド India	UZ ウズベキスタン Uzbekistan
	アイスランド Iceland	VN ヴィエトナム Viet Nam
	日本 Japan	Y U ユーゴースラヴィア Yugoslavia
	ケニア Kenya	□ Z A 南アフリカ共和国 South Africa
$\cdot =$	キルギス Kyrgyzstan	□ Z W ジンパブエ Zimbabve
	北朝鮮 Democratic People's Republic of Korea	
V KR	原国 Republic of Korea	ためのものである
! ==	カザフスタン Kazakhstan	
	セント・ルシア Saint Lucia	
LK	スリ・ランカ Sri Lanka	
		き、特許協力条約の下で認められる他の全ての国の指定を行う。ただし、この宣

16年の陳昭の丘島:西州人は、上記の信定に加えて、規則 4、9(b)の規定に基づき、特許協力条約の下で認められる他の全ての国の信定を行う。ただし、この官 官から除く旨の表示を追記欄にした国は、指定から除かれる。出版人は、これらの追加される指定が確認を条件としていること、並びに後先日から15月が経過する 前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、出版人によって取り下げられたものとみなされることを直含する。 (指定の確認(将金を含む)は、发光日か ら15月以内に受理官庁へ提出しなければならない。) 征式PCT/RO/101(第2月紙)(2000年1月)

....S PAGE BLANK (USPTO)

· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·				
第VI和 優先権	主張	他の優先権の主張 (先の出額) が	追記棚に記載され、一名	
先の出版日	先の出願番号	<u> </u>	先の出順	
	)			
(日、月、年)	<b>亚-4</b> 左杜歌网	国内出版 : 国名	広域出版 : *広域官庁名	国際出版 : 受理官庁名
(1) 16. 09. 99	平成 11 年特許顧 第 261391 号	日本国 Japan		
(2)				
(3)				
(3)				
	出稿 <i>(たたし、本国節出版が拠か</i> の ( ) の番号のものについてに、受理官庁 (日本国符許庁の長を	出される受理官庁に対して促出され、出願書類の認証謄本を作成し( () に対して請求している。	れた 国際 :	
	特許出版である場合には、そのst 0個()(ii)) 。 追記網を参照。	もの出版を行った工業所有様の保。	腹のためのバリ条約同盟国の少なく	(とも1ヶ国を追記機に表示しなけ
第711個 国際調	<b></b> 微関			
四隊調查機關(	ISA)の避択	ゲの間を指象の: 国際関査機関によって既に実施	不り月 3骨 3枚 : 当 言変 部の 又は解求されている場合)	査の照会(先の問金が、
		出版日 (日、月、年)	出級電号	国名(又は広域官庁)
I SA/ 'J	r P			
第VIII桐 照合棚	: 出願の書籍			
この国際出額の用紙の枚数は次	のとおりである。 この国際	出出順には、以下にチェックした	#類が添付されている。 #	
順番 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	· · 5 # 1. [v	/ 手数科計算用紙	5. 🇸 優先權書類 (上記	B第VI欄の( )の番号を記載する)
明細書(配列表を除く)・・	1   =	─ ✓ ✓ 納付する手数料に相当する特別	(1)	
請求の範囲 ・・・・・・		✓ 納付する手数料に相当する特別 ・ 印紙を貼付した都面 ▼ 内閣事務局の口座への振込み	_	・ て(翻訳に使用した含語名を記載す
・ 要約者・・・・・・・・		✓ 国際事務局の口座への振込み: 一 証明する書面		
121	1 1 2	/ 別個の記名押印された委任状		は他の生物材料に関する書面
図前. •••••••	·· 0 * 3. [	」 包括委任状の写し	8. ヌクレオチド又に (フレキシブルデ	(アミノ酸配例表 ィスク)
明細書の配列表・・・・・・	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	」記名押印(署名)の説明書	9. こここの他 (智類名を)	- 詳細に記載する)
<del></del> 승 <i></i> 하	26 枚			•
契約也とともに促示する図面:	本区	即駅出願の使用書語名: 白	本語	
第IX棡 提出者	の記名押印			
谷人の氏名 (名称) を記載し、			<u> </u>	
	Carpeting, as			÷
		·	(福)	
蒼	車 国 肇		(周盟)	
		•		
•				
·	<del></del>		····	
1. 国際出版として提出された	野類の実際の受理の日	- 受理官庁記入#	<b>過</b>	2. 図面
3. 国際出験として促出された。	<b>背類を補完する背類又は図而であ</b>	って		<b>クタロされた</b>
	ものの実際の受理の日(紅正日)			
	こ基づく必要な補完の期間内の受	型の日		不足図而がある
5. 出頭人により特定された 国際調査機関	ISA/JP	6.	R払いにつき、国際調査機関に と送付していない	7
		国際事務周記入		
記録原本の受理の日	•			
	<b>放終用紙) (1998年7月:</b>	再版 2 0 0 0 年 1 月 )		

#### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International applicati n No.
PCT/JP00/06304

	Int.C	B05D7/24		·	
Acc	cording to	International Patent Classification (IPC) or to both nation	nal classification and IPC		
B.	FIELDS	SEARCHED	1 - iS - si		
Mii	Int.C	cumentation searched (classification system followed by C1 C08L1/00-101/16, C09D5/00-20	01/10, B05D7/00-7/26		
Do	aumentatio	on searched other than minimum documentation to the ex	tent that such documents are included i	n the fields searched	
	•				
Ele		ta base consulted during the international search (name of	of data base and, where practicable, sear	ch terms used)	
İ	WPI/				
		<u> </u>			
C.	DOCUN	IENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
C	ategory*	Citation of document, with indication, where appr	opriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	
-		EP, 767467, A2 (ASAHI GLASS CO I	ITD),		
1		09 April, 1997 (09.04.97),	·	1-5,8-12,15-23	
	х	Claims & JP, 09-143420, A, Claims & US, 5905117, A		·	
1			Toductors Co. Ltd.)		
1		<pre>JP, 10-158012, A (Asahi Chemical 16 June, 1998 (16.06.98),</pre>	t industry co., nea.,,		
	<b>x</b> .	Claims (Family: none)		1-23	
		US, 5700844, A (IBM CORP), 23 December, 1997 (23.12.97),		,	
1	x	Claims		1-14	
		& JP, 10-025359, A, Claims			
1		JP, 11-217458, A (Hitachi Chemi	cal Co., Ltd.),		
	x	10 August, 1999 (10.08.99), Claims (Family: none)		1-5,8-12,15-23	
		JP, 5-294609, A (Yoshio IMAI),			
1	•	109 November, 1993 (09.11.93),		1-20	
L	x	Claims (Family: none)		,	
	_	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.  "T" later document published after the int	emational filing date or	
4	A" docum	categories of cited documents: ent defining the general state of the art which is not	priority date and not in conflict with the understand the principle or theory understand the principle or the principle	the application but cited to	
4	E" earlier	ered to be of particular relevance document but published on or after the international filing	"X" document of particular relevance; the considered novel or cannot be considered.	claimed invention cannot be ered to involve an inventive	
4	"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is step when the document is taken alo		e claimed invention cannot be		
special reason (as specified)			h documents, such		
-	means  "P" document published prior to the international filing date but later  "&" document member of the same patent family				
Ī	than the priority date claimed  Date of the actual completion of the international search 08 December, 2000 (08.12.00)  Date of mailing of the international search 26 December, 2000			26.12.00)	
<u> </u>	Jame and	mailing address of the ISA/	Authorized officer		
'	Jap	anese Patent Office			
▐,	Faccimile l	vo.	Telephone No.		

#### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internacional application No.

PCT/JP00/06304

ategory*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant	passages	Relevant to claim No
PX	JP, 2000-44875, A (JSR Corporation), 15 February, 2000 (15.02.00), Claims (Family: none)		1-23
PX	<pre>JP, 2000-38545, A (JSR Corporation), 08 February, 2000 (08.02.00), Claims (Family: none)</pre>	×	1-23
	·		
-		·	
		• .	·
	. ,	-	
			•
	•		



PCT

#### 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条) (PCT18条、PCT規則43、44)

出願人又は代理人 の書類記号 FP2353PCT	今後の手続きについては、国際調査報 及び下記5	発告の送付通知様式(PCT/ISA/220)を参照すること。				
国際出願番号 PCT/JP00/06304	国際出願日 (日.月.年) 14.09.00	優先日 (日.月.年) 16.09.99				
出願人 (氏名又は名称) 日立化成	出願人(氏名又は名称) 日立化成工業株式会社					
国際調査機関が作成したこの国際調査 この写しは国際事務局にも送付される	≦報告を法施行規則第41条(PCT18 る。	条)の規定に従い出願人に送付する。				
この国際調査報告は、全部で3	<b>ペ</b> ージである。					
この調査報告に引用された先行打	支術文献の写しも添付されている。					
1. 国際調査報告の基礎 a. 言語は、下記に示す場合を除・ □ この国際調査機関に提出さ	くほか、この国際出願がされたものに基 れた国際出願の翻訳文に基づき国際調	らでは、 とづき国際調査を行った。 査を行った。				
b. この国際出願は、ヌクレオチ この国際出願に含まれる書	b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。					
□ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表						
□ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表						
□ 出願後に、この国際調査機 □ 出願後に提出した書面によ 書の提出があった。	<ul><li>□ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表</li><li>□ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述</li></ul>					
■ 書面による配列表に記載し 書の提出があった。	た配列とフレキシブルディスクによる	配列表に記録した配列が同一である旨の陳述				
2. 請求の範囲の一部の調査	ができない(第I欄参照)。	•				
3.	いる(第Ⅱ欄参照)。					
4. 発明の名称は 🛛 🖽	願人が提出したものを承認する。					
□ 次	に示すように国際調査機関が作成した。					
	願人が提出したものを承認する。					
国	Ⅲ欄に示されているように、法施行規 際調査機関が作成した。出願人は、この 国際調査機関に意見を提出することが、	則第47条 (PCT規則38.2(b)) の規定により の国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこ できる。				
6. 要約書とともに公表される図は 第 図とする。 □ 出	、 願人が示したとおりである。	☒ なし				
.	願人は図を示さなかった。					
□ 本	図は発明の特徴を一層よく表している。					

A	A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC)) Int. Cl' C08L101/00, C08L83/04, C09D201/00, C09D183/04, B05D7/24			
_		) N III 7		
_	. 調査を行	「170 Mestel (1950时在秋八塔 (10C))		
ij/a	はをいった収	小限資料 (国際特許分類 (11-C) / C08L1/00-101/16, C09D5	/00-201/10, B05D7/	00-7/26
	int. O.			
最	小限資料以外	の資料で調査を行った分野に含まれるもの		·
		•		Ç
				·
<b>[</b> ]	国際調査で使用 WPI/L	]した電子データベース(データベースの名称、訂	周査に使用した用語) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	Ÿ
⊢				
		らと認められる文献		関連する
	用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連すると	きは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号
	Х	EP, 767467, A2 (ASAH D) 9. 4月. 1997 (09. 04 特許請求の範囲 & JP, 09-143420, A, & US, 5905117, A	. 97),	1-5,8-12,15-23
	x	JP, 10-158012, A (旭化月. 1998 (16.06.98), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)		1-23
h	X C欄の続	きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する	川紙を参照。 
	一 * 「A」 「A」 「A」 所特も国以優日文にの際後先若献頭 「L」 「C」		の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表出願と矛盾するものではなく、の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、の新規性又は進歩性がないと考 「Y」特に関連のある文献であって、上の文献との、当業者にとってよって進歩性がないと考えられ	発明の原理又は理論 当該文献のみで発明 えられるもの 当該文献と他の1以 自明である組合せに
	国際調査を完		国際調査報告の発送日	2.00
	国際調査機関	引の名称及びあて先 - 日本教皇 (ISA / IP)	特許庁審査官(権限のある職員) 藤本 保	4 J 9552
	日本	国特許庁(ISA/JP)   郵便番号100-8915		<b>4</b> 2
	東京	郵便番号100 3313	電話番号 03-3581-110	1 内線 3495

	関連すると認められる文献	
C (続き). 引用文献の	関連する	
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号
x	US, 5700844, A (IBM CORP) 23. 12月. 1997 (23. 12. 97), 特許請求の範囲 & JP, 10-025359, A, 特許請求の範囲	1-14
x	JP, 11-217458, A (日立化成工業株式会社) 10.8 月.1999 (10.08.99), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-5,8-12,15-23
x	JP, 5-294609, A (今井 淑夫) 9. 11月. 1993 (09. 11. 93), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-20
PX	JP, 2000-44875, A(ジェイエスアール株式会社) 15. 2月. 2000(15. 02. 00), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-23
PΧ	JP, 2000-38545, A (ジェイエスアール株式会社) 8. 2月. 2000 (08. 02. 00), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-23
		-



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl' C08L101/00, C08L83/04, C09D201/00, C09D183/04, B05D7/24				
B. 調査を行った分野				
調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))				
Int. Cl' C08L1/00-101/16, C09D	5/00-201/10, B05D7/	00-7/26		
1 h ( : 61 - 6,6 62 1) 6 6 - 1 - 1 - 1				
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		·		
	,			
•				
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、WPI/L	調査に使用した用語)			
	_			
G 8874 1 7 1 7 1 7 1 7 1 7 1 7 1 7 1 7 1 7 1				
C. 関連すると認められる文献		関連する		
引用文献の	きは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号		
EP, 767467, A2 (ASAI D) 9. 4月. 1997 (09. 04 X 特許請求の範囲 & JP, 09-143420, A, & US, 5905117, A	HI GLASS CO LT 4.97),	1-5,8-12,15-23		
JP, 10-158012, A(旭イ月. 1998 (16.06.98), X 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	化成工業株式会社)16.6	1-23		
	□ パテントファミリーに関する別	川紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願「&」同一パテントファミリー文献				
国際調査を完了した日 08.12.00	国際調査報告の発送日 26.	12.00		
国際調査機関の名称及びあて先日本国特許庁(ISA/JP) 郵便番号100-8915	特許庁審査官(権限のある職員) 藤本 保 電話番号 03-3581-1101	4 J 9 5 5 2 内線 3 4 9 5		
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	Temmo oo ooor rigor			

	国際調査報告	国際出願番号 РСТ/ЈРО	0/06304
C (続き).	関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときに	は、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	US, 5700844, A (IBM CO 997 (23. 12. 97), 特許請求の範囲 & JP, 10-025359, A, 特許	RP) 23. 12月. 1	1-14
X	JP, 11-217458, A (日立化成月. 1999 (10.08.99), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	工業株式会社)10.8	1-5,8-12,15-23
Х	JP, 5-294609, A (今井 淑夫 (09.11.93), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	) 9. 11月. 1993	1-20
PΧ	JP, 2000-44875, A (ジェイ 5. 2月. 2000 (15. 02. 00) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	エスアール株式会社) 1 ,	1-23
PΧ	JP, 2000-38545, A (ジェイ8. 2月. 2000 (08. 02. 00) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)		1-23
		3	

#### PAT NT COOPERATION TREAT

From the	INTER	NATIONAL	<b>BUREAU</b>
----------	-------	----------	---------------

#### **PCT**

#### **NOTIFICATION OF ELECTION**

(PCT Rule 61.2)

To:

Commissioner **US Department of Commerce** United States Patent and Trademark Office, PCT 2011 South Clark Place Room CP2/5C24 Arlington, VA 22202

Date of mailing (day/month/year) 08 June 2001 (08.06.01)	in its capacity as elected Office		
International application No. PCT/JP00/06304	Applicant's or agent's file reference FP2353PCT		
International filing date (day/month/year) 14 September 2000 (14.09.00)	Priority date (day/month/year) 16 September 1999 (16.09.99)		
Applicant			
NARITA, Takenori et al			

1.	The designated Office is hereby notified of its election made:
	X in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
	05 April 2001 (05.04.01)
	in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:
2.	The election X was
	was not
	made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

**Authorized officer** 

**Antonia Muller** 

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

PCT

#### 国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条) [PÇT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 FP2353PCT	今後の手続きについては、国際予備審査幸 I P E A / 4 1	&告の送付通知(様式PCT/ 16)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/06304	国際出願日 (日.月.年) 14.09.00	優先日 (日.月.年) 16.09.99	
国際特許分類 (IPC) Int. Cl'	C08L101/00, C08L83/0 C09D183/04, B05D7/24		
出願人(氏名又は名称) 日立化成工業株式会社			

1.	国際	予備	審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。
2.	この	国際	予備審査報告は、この表紙を含めて全部で4 ページからなる。
		查機 (P	国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審 関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 CT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) 書類は、全部でページである。
3.	この	国際	予備審査報告は、次の内容を含む。
	I	X	国際予備審査報告の基礎
	п		優先権
	Ш		新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
	IV		発明の単一性の欠如
	V	X	PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
	VI	X	ある種の引用文献
	VII		国際出願の不備
	VIII		国際出願に対する意見
		٠,	

国際予備審査の請求書を受理した日 05.04.01	国際予備審査報告を作成した日 07.09.01
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 4 J 9552 藤本 保 電話番号 03-3581-1101 内線 3495

#### 国際予備審査報告

国際出願番号 PCT/JP00/06304

Ι.	Œ	国際予備審査報	  告の基	<del></del>							
1.			査報告 提出さ	は下記の出 れた差し替	願書類に基 え用紙は、	づいて作成さ この報告書に	: れた。 (法策 において「出願	56条(PC) 〔時」とし、	T 1.4 条)の 本報告書には	規定に基づく命令 添付しない。	ric
[	X]	出願時の国際	器國出	類							
[	□	明細書 明細書 明細書	第 第 第			ページ、 ページ、 ページ、		是出されたも 野査の請求書	と共に提出さ	れたもの 共に提出されたも	o Ø
. [		請求の範囲 請求の範囲 請求の範囲 請求の範囲	第 — 第 — —			-項、 -項、 -項、 -項、	PCT19	是出されたも ) 条の規定に 等査の請求書	基づき補正さ と共に提出さ	れたもの れたもの 共に提出されたも	30
		図面 図面 図面	第 第 第			_ページ/区 _ページ/区 _ページ/区 _	、 出願時に扱い 国際予備報	<b>音査の請求書</b>	と共に提出さ	れたもの 共に提出されたも	50
		明細書の配列 明細書の配列 明細書の配列	リ表の部	分 第		_ページ、 _ページ、 _ページ、 _ページ、	出願時に打 国際予備領 	是出されたも 審査の請求書 	と共に提出さ	れたもの : 共に提出された(	<b>らの</b>
2.	_	上記の出願書類	質の言語	は、下記に	示す場合を	除くほか、	この国際出願の	の言語である	•		
	_	上記の書類は、	下記の	言語である	· '	語で	ある。				
			.則48. 3	(b)にいう国	際公開の言	語	ハう翻訳文の たは55.3にい		言語		*
3.		この国際出願に	は、ヌク	レオチド又	はアミノ配	<b>愛配列を含ん</b>	でおり、次の	配列表に基づ	き国際予備署	<b>寄査報告を行った。</b>	
	□ この国際出願に含まれる書面による配列表 □ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表 □ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表 □ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表 □ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった □ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。										
4. 補正により、下記の書類が削除された。         明細書       第         請求の範囲       第         図面       図面の第											
5.	5. この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) ごの補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)										
							:				

THIS PAGE BLANK (USPIN



#### 国際出願番号 PCT/JP00/06304

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可 文献及び説明	「能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、そ 	れを <b>嬰付ける</b> 
1. 見解		
新規性(N)	請求の範囲 請求の範囲 1-23	有 無
進歩性(IS)	請求の範囲 請求の範囲 1-23	有 無
. 産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲 <u>1-23</u> 請求の範囲	有 無

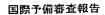
#### 2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

請求の範囲1-5,8-12,15-23は、国際調査報告で引用された文献1 (EP 767467 A2 (ASAHI GLASS CO LTD)9.4月. 1997 (09.04.97),特許請求の範囲)及び文献2 (JP 11-217 458 A (日立化成工業株式会社)10.8月.1999 (10.08.99), 特許請求の範囲)に記載されており新規性を有しない。

請求の範囲1-23は、国際調査報告で引用された文献3(JP 10-1580 12 A(旭化成工業株式会社)16.6月.1998(16.06.98), 特許請求の範囲)に記載されており新規性を有しない。

請求の範囲1-14は、国際調査報告で引用された文献4(US 5700844 A(IBM CORP)23.12月.1997(23.12.97),特許請求 の範囲)に記載されており新規性を有しない。

請求の範囲1-20は、国際調査報告で引用された文献5(JP 5-294609 A (今井 淑夫) 9. 11月. 1993 (09. 11. 93), 特許請求の範囲)に記載されており新規性を有しない。



ある種の引用文献

国際出願番号 PCT/JP00/06304

1. ある種の公表された文書(PCT規則	ij70. 10)		
出願番号 特許番号	公知日 (日. 月. 年)	出願日 (日.月.年)	優先日(有効な優先権の主張) (日.月.年)
JP 2000-44875 A	(15. 02. 00)	(17. 05. 99)	(18. 05. 98)
JP 2000-38545 A	(08. 02. 00)	(17. 05. 99)	(18. 05. 98)

2. 書面による開示以外の開示 (PCT規則70.9)

書面による開示以外の開示の種類	<b>魯面による開示以外の開示の日付</b>	書面による開示以外の開示に言及している
音曲による四次のパップログ	. (日.月.年)	書面の日付(日.月.年)

# Translation

## PATENT COOPERATION TREA

#### INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference FP2353PCT	FOR FURTHER ACTION	SeeNotificationofTransmittalofInternational Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No.	International filing date (day/r	month/year) Priority date (day/month/year)
PCT/JP00/06304	14 September 2000 (1	4.09.00) 16 September 1999 (16.09.99)
International Patent Classification (IPC) or C08L 101/00, 83/04, C09D 201	national classification and IPC 1/00, 183/04, B05D 7/24	•
Applicant	HITACHI CHEMICAL	CO., LTD.
and is transmitted to the applicant  2. This REPORT consists of a total o  This report is also accomp been amended and are the b Rule 70.16 and Section 607	f sheets, includi	ts of the description, claims and/or drawings which have containing rectifications made before this Authority (see
This report contains indications re      Basis of the report		
IV Lack of unity of in  V Reasoned statemer citations and explain  VI Certain documents	nvention  nt under Article 35(2) with regard anations supporting such statemen	ty, inventive step and industrial applicability  d to novelty, inventive step or industrial applicability; ent
VIII Certain observations on the international application		
Date of submission of the demand	Date of	of completion of this report
05 April 2001 (05.0		07 September 2001 (07.09.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Autho	orized officer
Facsimile No.	Telep	phone No.



ational application No.

#### PCT/JP00/06304

1. With regard to the elements of the international application.*   the description:   pages	1. Basis	or the re	
the description:  pages	1. With	regard to	the elements of the international application:*
pages	$\boxtimes$	the inte	ernational application as originally filed
pages		the des	crintion:
pages			as animally filed
the claims:     pages			
the claims: pages			
pages	_	pages	, fried with the letter of
pages		the clai	ims:
pages		pages	, as originally filed
pages		pages	, as amended (together with any statement under Article 19
the drawings:		pages	
the drawings: pages page		pages	
pages			
pages			
the sequence listing part of the description:  pages  pages  filed with the letter of  (Itel with regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.  These elements were available or furnished to this Authority in the following language  which is:  the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).  the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).  the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).  With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international application are reliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:  contained in the international application in written form.  filed together with the international application in computer readable form.  furnished subsequently to this Authority in written form.  furnished subsequently to this Authority in computer readable form.  The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.  The statement that the information recorded in computer réadable form is identical to the written sequence listing has been furnished.  The amendments have resulted in the cancellation of:  the description, pages  the claims, Nos.  the cl			, as originally filed
the sequence listing part of the description:  pages  pages  filed with the letter of  2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.  These elements were available or furnished to this Authority in the following language which is:  the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).  the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).  the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/ or 55.3).  With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:  contained in the international application in computer readable form.  filed together with the international application in computer readable form.  furnished subsequently to this Authority in written form.  furnished subsequently to this Authority in computer readable form.  The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.  The statement that the information recorded in computer réadable form is identical to the written sequence listing has been furnished.  The amendments have resulted in the cancellation of:  the description, pages the claims, Nos.  the claims, Nos.  the claims, Nos.  the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  **Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and ar			
pages		pages	, filed with the letter of
pages	tì	he seque	ence listing part of the description:
pages	_		
2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.  These elements were available or furnished to this Authority in the following language which is:  the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).  the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).  the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).  With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:  contained in the international application in written form.  filed together with the international application in computer readable form.  furnished subsequently to this Authority in computer readable form.  The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.  The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.  The amendments have resulted in the cancellation of:  the description, pages			
2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.  These elements were available or furnished to this Authority in the following language which is:  the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).  the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).  the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).  3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:  contained in the international application in written form.  filed together with the international application in computer readable form.  furnished subsequently to this Authority in computer readable form.  furnished subsequently to this Authority in computer readable form.  The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.  The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.  4. The amendments have resulted in the cancellation of:  the description, pages  the claims, Nos.  the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).			
the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.  These elements were available or furnished to this Authority in the following language which is:  the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).  the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).  the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/ or 55.3).  3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:  contained in the international application in written form.  filed together with the international application in computer readable form.  furnished subsequently to this Authority in computer readable form.  furnished subsequently to this Authority in computer readable form.  The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.  The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.  The amendments have resulted in the cancellation of:  the description, pages  the claims, Nos.  the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).		F-5	, fried with the letter of
the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).  the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/ or 55.3).  3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:  contained in the international application in written form.  filed together with the international application in computer readable form.  furnished subsequently to this Authority in written form.  The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.  The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.  The amendments have resulted in the cancellation of:  the description, pages  the claims, Nos.  the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  *Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).	the int	ternation	nal application was filed, unless otherwise indicated under this item.
the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/ or 55.3).  3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:    contained in the international application in written form.   filed together with the international application in computer readable form.   furnished subsequently to this Authority in written form.   furnished subsequently to this Authority in computer readable form.   The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.   The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.   The amendments have resulted in the cancellation of:   the description, pages		the lan	guage of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
or 55.3).  3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:    contained in the international application in written form.   filed together with the international application in computer readable form.   furnished subsequently to this Authority in written form.   furnished subsequently to this Authority in computer readable form.   The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.   The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.   The amendments have resulted in the cancellation of:   the description, pages		the lan	guage of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
contained in the international application in written form.    filed together with the international application in computer readable form.   furnished subsequently to this Authority in written form.   furnished subsequently to this Authority in computer readable form.   furnished subsequently to this Authority in computer readable form.   The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.   The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.   The amendments have resulted in the cancellation of:   the description, pages			
filed together with the international application in computer readable form.  furnished subsequently to this Authority in written form.  furnished subsequently to this Authority in computer readable form.  The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.  The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.  4. The amendments have resulted in the cancellation of:  the description, pages  the claims, Nos.  the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).	3. With prelim	regard ninary ex	to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international xamination was carried out on the basis of the sequence listing:
filed together with the international application in computer readable form.  furnished subsequently to this Authority in written form.  furnished subsequently to this Authority in computer readable form.  The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.  The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.  4. The amendments have resulted in the cancellation of:  the description, pages  the claims, Nos.  the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).		contain	ned in the international application in written form.
furnished subsequently to this Authority in written form.  furnished subsequently to this Authority in computer readable form.  The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.  The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.  The amendments have resulted in the cancellation of:  the description, pages  the claims, Nos.  the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).	$\Box$		•
furnished subsequently to this Authority in computer readable form.  The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.  The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.  The amendments have resulted in the cancellation of:  the description, pages  the claims, Nos.  the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).	Ħ		
The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.  The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.  The amendments have resulted in the cancellation of:  the description, pages the claims, Nos. the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).	H		
international application as filed has been furnished.  The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.  4. The amendments have resulted in the cancellation of:  the description, pages  the claims, Nos.  the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).	H		
been furnished.  4. The amendments have resulted in the cancellation of:  the description, pages the claims, Nos. the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).		interna	atement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the tional application as filed has been furnished.
the description, pages the claims, Nos the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).			·
the claims, Nos. the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).	4.	The am	endments have resulted in the cancellation of:
the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).			the description, pages
the drawings, sheets/fig  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).	į		the claims, Nos.
This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**  * Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).			
in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).		This rep	ort has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go
·	in this	s report	theets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16
		•	ent sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

ational application No.

PCT/JP00/06304

Statement			
Novelty (N)	Claims		YE
	Claims	1-23	NO
Inventive step (IS)	Claims		YE
	Claims	1-23	NC
Industrial applicability (IA)	Claims	1-23	YE
maddia appireading ()	Claims		NC NC

#### 2. Citations and explanations

The subject matters of claims 1-5, 8-12 and 15-23 do not appear to be novel, since they are described in document 1 [EP, 767467, A2 (Asahi Glass Co., Ltd.), 9 April, 1997 (09.04.97), the claims] and document 2 [JP, 11-217458, A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 10 August, 1999 (10.08.99), the claims] respectively cited in the ISR.

The subject matters of claims 1-23 do not appear to be novel, since they are described in document 3 [JP, 10-158012, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 16 June, 1998 (16.06.98), the claims] cited in the ISR.

The subject matters of claims 1-14 do not appear to be novel, since they are described in document 4 [US, 5700844, A (IBM Corp.), 23 December, 1997 (23.12.97), the claims] cited in the ISR.

The subject matters of claims 1-20 do not appear to be novel, since they are described in document 5 [JP, 5-294609, A (Toshio Imai), 9 November, 1993 (09.11.93), the claims] cited in the ISR.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

ational application No.

PCT/JP00/06304

#### VI. Certain documents cited

1. C	ertain	published	documents	(Rule	70.10)
------	--------	-----------	-----------	-------	--------

Application No. Patent No.	Publication date (day/month/year)	Filing date (day/month/year)	Priority date (valid claim) (day/month/year)
JP 200-44875 A	15 February 2000 (15.02.2000)	17 May 1999 (17.05.1999)	18 May 1998 (18.05.1998)
[E,X] JP 2000-38545 A [E,X]	08 February 2000 (08.02.2000)	17 May 1999 (17.05.1999)	18 May 1998 (18.05.1998)

2. Non-written disclosures (Rule 70.9)

Kind of non-written disclosure

Date of non-written disclosure (day/month/year)

Date of written disclosure referring to non-written disclosure (day/month/year)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

#### (19) 世界知的所有権機関 国際事務局





(43) 国際公開日 2001 年3 月22 日 (22.03.2001)

**PCT** 

#### (10) 国際公開番号 WO 01/19922 A1

(51) 国際特許分類<sup>7</sup>: **C08L 101/00**, 83/04, C09D 201/00, 183/04, B05D 7/24

(21) 国際出願番号: PCT/JP00/06304

(22) 国際出願日: 2000年9月14日(14.09.2000)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ: 特願平11/261391 1999年9月16日(16.09.1999) JJ

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日立化 成工業株式会社 (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒163-0449 東京都新宿区西新宿二丁目1番1 号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 成田武憲 (NARITA, Takenori) [JP/JP]; 〒317-0061 茨城県日 立市東町4-2-9山崎寮129号室 Ibaraki (JP). 森嶋浩 之 (MORISIMA, Hirovuki) [JP/JP]; 〒319-1417 茨城 県日立市かみあい町2-19-3 Ibaraki (JP). 野部 茂 (NOBE, Shigeru) [JP/JP]; 〒316-0032 茨城県日立市西成沢町3-21-2-402 Ibaraki (JP). 榎本和宏 (ENOMOTO, Kazuhiro) [JP/JP]; 〒317-0061 茨城県日立市東町4-2-9 山崎寮131号室 Ibaraki (JP). 桜井治彰 (SAKURAI, Haruaki) [JP/JP]; 〒317-0061 茨城県日立市東町4-2-9 山崎寮303号室 Ibaraki (JP). 寺田信子 (TERADA, Nobuko) [JP/JP]; 〒316-0006 茨城県日立市末広町2-3-16 Ibaraki (JP).

- (74) 代理人: 弁理士 津国 肇(TSUKUNI, Hajime); 〒 105-0001 東京都港区虎ノ門1丁目22番12号 SVAX TS ビル Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): JP, KR, SG, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類:

-- 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: COMPOSITION, METHODS OF FORMING LOW-PERMITTIVITY FILM FROM THE COMPOSITION, LOW-PERMITTIVITY FILM, AND ELECTRONIC PART HAVING THE LOW-PERMITTIVITY FILM

(54) 発明の名称: 組成物、その組成物を用いた低誘電率膜の形成方法、低誘電率膜及びその低誘電率膜を有する電子部品

(57) Abstract: A composition obtained by evenly dissolving (a) a thermally decomposable polymer and (b) a siloxane oligomer in (c) an organic solvent; a composition comprising (a) a thermally decomposable polymer, (b) a siloxane oligomer, and (c)' an organic solvent in which both of the ingredients (a) and (b) are soluble; a method of forming a low-permittivity film characterized by applying the composition to a substrate to form a composite film comprising the thermally decomposable polymer and the siloxane oligomer evenly compatibilized therewith and then heating the resultant film to condense the siloxane oligomer and remove the thermally decomposable polymer; a method of forming a low-permittivity film characterized by applying the composition to a substrate to form a composite film comprising the thermally decomposable polymer and the siloxane oligomer evenly compatibilized therewith, subsequently conducting a first heating step in which the siloxane oligomer is crosslinked while keeping the thermally decomposable polymer remaining in the film, and then conducting a second heating step in which the thermally decomposable polymer is removed; and a low-permittivity film formed by either of the methods for low-permittivity film formation.

WO 01/19922 A1

(57) 要約:

本発明は、(a) 熱分解性ポリマー及び(b) シロキサンオリゴマーが(c) 有機溶剤に均一に溶解してなる組成物、(a) 熱分解性ポリマー、(b) シロキサンオリゴマー及び(c) が記(a) と(b) の両方が溶解する有機溶剤を含んでなる組成物、この組成物を基材に塗布し、熱分解性ポリマーとシロキサンオリゴマーが均一に相溶した複合膜を形成した後、加熱により、シロキサンオリゴマーの縮合反応と熱分解性ポリマーの除去を行うことを特徴とする低誘電率膜の形成方法、この組成物を基材に塗布し、熱分解性ポリマーとシロキサンオリゴマーが均一に相溶した複合膜を形成した後、熱分解性ポリマーが残存する状態でシロキサンオリゴマーを架橋させる第一の加熱工程と、熱分解性ポリマーを除去する第二の加熱工程を行うことを特徴とする低誘電率膜の形成方法、この低誘電率膜の形成方法によって形成される低誘電率膜並びにこの低誘電率膜を有する電子部品を提供する。

#### 明 細 書

組成物、その組成物を用いた低誘電率膜の形成方法、低誘電率膜及びその低誘電率膜 を有する電子部品

5

10

#### 技術分野

本発明は、組成物、その組成物を用いた低誘電率膜の形成方法、低誘電率膜及びその低誘電率膜を有する電子部品に関する。より詳しくは、半導体素子用の層間絶縁膜等として有用な低誘電率膜を形成するための組成物、その組成物を用いた低誘電率膜の形成方法とその形成方法により得られる低誘電率膜及びその低誘電率膜を有する半導体装置、多層配線板等の電子部品に関する。

#### 背景技術

LSIの高集積化による配線の微細化にともない、配線間容量の増大による信号遅 15 延時間の増大が問題となってきている。

従来から、比誘電率4.2程度のCVD法による $SiO_2$ 膜が層間絶縁膜として用いられてきたが、デバイスの配線間容量を低減し、LSIの動作速度を向上するため、より低誘電率な膜が求められている。

低誘電率膜としては、比誘電率3.5程度のSiOF膜(CVD法)、比誘電率2.20 5~3.0の有機SOG(Spin On Glass)、有機ポリマー等が現在実用化の段階にきている。それに対し、今後必要とされる比誘電率2.5以下の材料については、フッ素樹脂、多孔質膜等が提案されているが、LSIの層間絶縁膜として十分な特性を有する材料は開発されていないのが現状である。

フッ素樹脂は、2程度の比誘電率を有することから、低誘電率材料として期待され 25 ているが、Tgが300℃以下であるため、そのままではLSIの層間絶縁膜へ適用 することが困難である。この問題を解決する方法として、特開平9-143420号 公報に示される様なフッ素樹脂とポリシロキサンの複合膜を使用することが提案され ている。この方法では比誘電率2.5以下の絶縁膜を得る事が可能であるが、フッ素

10

15

20

25

樹脂の熱分解開始温度が400℃以下であるため、将来LSIのプロセス温度が低温 化しても十分なマージンがないという問題が有る。

多孔質膜は、比誘電率 2. 5以下を達成可能な技術として注目されている。多孔質膜の形成方法としては、特公平 6-12790号公報に示されるようなポリスチレンまたはポリエチレン等の有機ポリマーを含む有機ポリシロキサン系塗布溶液を塗布し熱処理する方法や、特開平10-25359号公報に示されるような、ポリシロキサン前駆体中にポリマー粒子を分散させる方法が提案されている。しかし、これらの方法は、多孔質膜を形成するためにポリマー粒子をポリシロキサンの膜中に分散させ、その後ポリマー粒子を加熱により除去しているため、得られる多孔質膜の孔の大きさを 0. 1μm以下に制御するのは困難である。今後の微細化したLSIでは配線幅は 0.1~0.5μm程度になると予想されるため、0.1μm以上の大きさの孔を有する多孔質膜は層間絶縁膜としては用いることができない。

この問題を解決するため、有機ポリマーとポリシロキサンがともに溶剤に溶解した組成物から多孔質膜を形成する方法が特開平10-158012号公報、特開平11-217458号公報に示されている。しかし、特開平10-158012号公報に示されている方法では、有機ポリマーとポリシロキサンの溶液を基材に塗布した後、低温で塩基触媒を用いてゲル化させる工程を必要とするため、工程数が増え、膜質の制御も難しいという問題がある。また、特開平11-217458号公報に示されている方法は、有機ポリマーとして耐熱性の高いフッ素樹脂を用いているため、有機ポリマーを完全に分解するためには、高温(450℃程度)で長時間の熱処理が必要となる。

配線材料として、従来から用いられているA1配線を用いた場合には、4500の処理温度は許容範囲であるが、長時間の熱処理は、生産性を低下させる。また、最近は、配線材料としてCuが適用されはじめているが、Cu配線を用いた場合には、許容される処理温度が低下(4000℃程度)するため、この方法は適用が難しい。

結局、比誘電率が2.5以下で、400℃程度で形成可能でかつ、微細な配線を有するLSI等の半導体装置や多層配線板の層間絶縁膜として適用可能な低誘電率膜の形成方法は、現在のところ見出されていない。

本発明は、400℃程度の加熱で形成可能でかつ、微細な配線を有するLSI等の 半導体装置や多層配線板の層間絶縁膜として適用可能な比誘電率が2.5以下の低誘 電率膜を得ることができる組成物を提供するものである。

本発明は、また、400℃程度の加熱で、微細な配線を有するLSI等の半導体装置や多層配線板の層間絶縁膜として適用可能な比誘電率が2.5以下の低誘電率膜を 歩留まりよく簡便に得ることができる低誘電率膜の形成方法を提供するものである。

本発明は、更に、微細な配線を有するLSI等の半導体装置や多層配線板の層間絶 緑膜として適用可能な比誘電率が2.5以下の低誘電率膜を提供するものである。

本発明は、更に、前記の低誘電率膜を有してなる信号遅延の少ない、高品位、高信 10 頼性のLSI等の半導体装置、多層配線板などの電子部品を提供するものである。

#### 発明の要旨

本発明は、(a)熱分解性ポリマー及び(b)シロキサンオリゴマーが(c)有機 溶剤に均一に溶解してなることを特徴とする組成物に関する。

- 15 本発明は、また、(a)熱分解性ポリマー、
  - (b) シロキサンオリゴマー及び
  - (c), 前記(a)と(b)の両方が溶解する有機溶剤

から成ることを特徴とする組成物に関する。

本発明は、また、(b)シロキサンオリゴマーが、非加水分解性の有機基を有する 20 化合物である前記の組成物に関する。

本発明は、また、(b)のシロキサンオリゴマーが、下記一般式(I):

$$(R^{1})_{m}$$
  
| Si-(OR<sup>3</sup>)<sub>4-m-n</sub> (I)  
| (R<sup>2</sup>)<sub>n</sub>

式中、 $R^1$ 及び $R^2$ は互いに同一または相異なる非加水分解性基を表わし、 $R^3$ は炭素数 $1\sim6$ のアルキル基を表わし、m及びnは、それぞれ、 $0\leq m$ + $n\leq3$ を満たすように選ばれる $0\sim3$ の整数である、

25 で示されるアルコキシシラン類の加水分解縮合物である前記の組成物に関する。

本発明は、また、(a)熱分解性ポリマーが、空気気流下、30℃以下から昇温速度20℃/minで熱重量分析を行った時の、150℃の重量に対する250℃における重量減少が5%未満のポリマーである前記の組成物に関する。

本発明は、また、(a) 熱分解性ポリマーが、空気気流下、30℃以下から昇温速 5 度20℃/minで熱重量分析を行った時の、150℃の重量に対する400℃における 重量減少が80%以上であるポリマーである前記の組成物に関する。

本発明は、また、(a)熱分解性ポリマーが、フッ素を含まないポリマーである前記の組成物に関する。

本発明は、また、(a)熱分解性ポリマーが、メタクリル系ポリマー又はアクリル 10 系ポリマーである前記の組成物に関する。

本発明は、また、前記の組成物を基材に塗布し、熱分解性ポリマーとシロキサンオリゴマーが均一に相溶した複合膜を形成した後、加熱により、シロキサンオリゴマーの縮合反応と熱分解性ポリマーの除去を行うことを特徴とする低誘電率膜の形成方法に関する。

15 本発明は、また、前記の組成物を基材に塗布し、熱分解性ポリマーとシロキサンオリゴマーが均一に相溶した複合膜を形成した後、熱分解性ポリマーが残存する状態でシロキサンオリゴマーを架橋させる第一の加熱工程と、熱分解性ポリマーを除去する第二の加熱工程を行うことを特徴とする低誘電率膜の形成方法に関する。

本発明は、また、第一の加熱工程の温度が80~350℃で、第二の加熱工程の温 20 度が350~500℃である前記の低誘電率膜の形成方法に関する。

本発明は、また、前記の低誘電率膜の形成方法によって形成される低誘電率膜に関する。

本発明は、また、前記の低誘電率膜を有する電子部品に関する。

#### 25 発明を実施するための最良の形態

本発明における(a)熱分解性ポリマーとしては、例えば、アクリル系ポリマー、メタクリル系ポリマー、ポリエステル系ポリマー、ポリエーテル系ポリマー、ビニル系ポリマー、ポリイミド系ポリマー、フッ化ビニリデン系ポリマー、含フッ素ビニル

20

25

系ポリマー、溶媒可溶性パーフロロポリマー等が挙げられる。これらは、単独で又は 2種以上を組み合わせて使用される。

(a) 熱分解性ポリマーの分解温度は、熱重量分析を用いて確認できる。本発明では、以下の装置、条件を用いて、(a) 熱分解性ポリマーの熱重量分析を行い、分解温度を確認した。

装置:TG-DTA6200(セイコー電子製)

昇温開始温度:30℃以下

昇温速度: 20℃/min

サンプル量: 1 0 mg

10 雰囲気:空気 2 0 0ml/min

なお、(a)熱分解性ポリマー分解開始前の基準とする重量は、昇温途中の150℃ での重量とした。150℃以下での重量減少は、吸着した水分等の除去により起こり、

(a) 熱分解性ポリマーの分解以外の要因によるものとした。

250℃での重量減少が5%以上の(a)熱分解性ポリマーの例としては、テトラ 15 メチレンオキシド、ポリエチレングリコール等のポリエーテル系ポリマーが挙げられ る。

250℃での重量減少が5%未満の(a)熱分解性ポリマーの例としては、ポリ酢酸ビニルのようなビニルエステル系ポリマー、ポリメチルメタクリレートのようなメタクリル酸エステル系ポリマー、ポリメチルアクリレートのようなアクリル酸エステル系ポリマー、ポリビニルアルコール、ポリエチレンイミン、フッ素樹脂等が挙げられる。

250℃での重量減少が5%未満で、400℃における重量減少が80%以上の

(a) 熱分解性ポリマーとしては、ポリメチルメタクリレートのようなメタクリル酸エステル系ポリマー、ポリメチルアクリレートのようなアクリル酸エステル系ポリマー、ポリエチレンイミン等が挙げられる。

中でも、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレートのようなメタクリル酸エステル系ポリマー、アクリル酸エステル系ポリマーでは、250℃での重量減少は2%未満で、400℃における重量減少が90%以上であり、本発明の組成物に用

15

20

いる(a)熱分解性ポリマーとして特に優れている。

フッ素樹脂は400℃程度の耐熱性を有するため、加熱温度400℃程度ではポリマーの除去に長時間の加熱が必要となり、実用性が劣る傾向がある。従って(a) 熱分解性ポリマーとしてフッ素を含まないポリマーが好ましい。

5 本発明における(b)ポリシロキサンオリゴマーとしては、例えば、下記一般式(I):

$$(R^{1})_{m}$$
  
 $Si = (OR^{3})_{4-m-n}$  (I)  
 $(R^{2})_{n}$ 

式中、 $R^1$ 及び $R^2$ は互いに同一または相異なる非加水分解性基を表わし、 $R^3$ は炭素数 $1\sim6$ のアルキル基を表わし、m及びnは、それぞれ、 $0\leq m+n\leq 3$ を満たすように選ばれる $0\sim3$ の整数である、

で示されるアルコキシシラン類の加水分解縮合物等が挙げられる。加水分解縮合物は、部分的に加水分解縮合したものでもよく、全部が加水分解縮合したものでもよい。

上記非加水分解性基としては、入手容易性から炭素数1~14の非加水分解性基が好ましい。非加水分解性基としては、γーグリシドキシプロビル基、γーアミノプロビル基、アミノフェニル基、Nーフェニルーγーアミノプロビル基等の反応性基を有する有機基、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基等のアルキル基、ビニル基等のアルケニル基、フェニル基、トリル基等のアリール基、トリフロロメチル基、トリフロロプロピル基、ペンタフロロブチル基、ノナフロロヘキシル基、トリデカフロロオクチル基、ヘブタデカフロロデシル基、ヘブタデカフロロウンデシル基等の含フッ素アルキル基などが挙げられる。上記の非加水分解性基の中でもアルキル基及びアリール基は特に好ましい。アルキル基及びアリール基は耐熱性が高く疎水性であるため、これらを用いることにより高耐熱性で低吸湿性の低誘電率膜が得られる。

本発明における加水分解縮合物は、一般式(I)でm=n=0の加水分解縮合物、m+n=1の加水分解縮合物、m+n=2の加水分解縮合物及びm+n=3の加水分解縮合物よりなる群から選ばれる1種又は2種以上を組み合わせたものとできる。

ただし、当然ながらm+n=3であるアルコキシシラン類は、分子内に加水分解基 25 を1つしか有しておらず、これ単独では加水分解縮合物を形成しえないので、m+n

10

=3であるアルコキシシラン類は、溶液中でのアルコキシシラン類の加水分解縮合物 の過剰な反応を抑制するなどの目的で、m=n=0のアルコキシシラン類、m+n=1のアルコキシシラン類又はm+n=2のアルコキシシラン類と併用される。m+n=3であるアルコキシシラン類は、全アルコキシシラン類に対して10モル%以下であることが好ましい。

また、非加水分解性基を有さないm=n=0のアルコキシシラン類を適当に加えることで、得られる低誘電率膜の機械強度が向上できる。しかし、m=n=0のアルコキシシラン類の割合が多くなると、得られる膜の誘電率が高くなり、吸湿性も増大する。従って、m=n=0のアルコキシシラン類の添加量は、膜の機械強度と誘電率、吸湿性のバランスから決定するのが好ましい。好ましい添加量としては、非加水分解性基を有するアルコキシシラン1モルに対し、m=n=0のアルコキシシラン類0.1~0.7モルである。

これらのアルコキシシラン類の具体例を以下に示す。

テトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン、テトラプロポキシシラン等のテト ラアルコキシシラン類、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン等の 15 モノアルキルトリアルコキシシラン類、フェニルトリメトキシシラン、フェニルトリ エトキシシラン等のモノアリールトリアルコキシシラン類、ビニルトリメトキシシラ ン、ビニルトリエトキシシラン等のモノアルケニルトリアルコキシシラン類、トリフ ロロメチルトリメトキシシラン、トリフロロプロピルトリメトキシシラン、ペンタフ **「ロロブチルトリメトキシシラン、ノナフロロヘキシルトリメトキシシラン、トリデカ** 20 フロロオクチルトリメトキシシラン、ヘプタデカフロロデシルトリメトキシシラン、 ヘプタデカフロロデシルメチルジメトキシシラン、ヘプタデカフロロウンデシルトリ メトキシシラン、 (4-パーフロロプチルフェニル) トリメトキシシラン、 (4-パ ーフロロヘキシルフェニル)トリメトキシシラン、(4 ーパーフロロオクチルフェニ ル) トリメトキシシラン等の含フッ素アルコキシシラン類、γーグリシドキシプロピ 25 ルトリメトキシシラン、y - グリシドキシプロピルトリエトキシシラン等のエポキシ シラン類、γ-アミノプロピルメチルジエトキシシラン、γ-アミノプロピルトリエ トキシシラン等の脂肪族アミノシラン類、アミノフェニルトリメトキシシラン、アミ



ノフェニルトリエトキシシラン、N-フェニル-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン等の含芳香環アミノシラン類などが挙げられる。これらは、単独で又は 2 種以上を組み合わせて使用される。

アルコキシシラン類の縮合反応は、常法により行うことができ、例えば、アルコキ 5 シシラン類を、溶剤及び触媒の存在下に、水を添加して加水分解縮合反応させる方法 がある。

この場合、必要に応じて加熱を行ってもよい。触媒としては塩酸、硝酸、硫酸等の無機酸、ギ酸、シュウ酸、酢酸等の有機酸が使用できる。通常、加水分解縮合物の重量平均分子量(ゲルパーミエーションクロマトグラフィ(GPC)により求め標準ポリスチレン換算した値)が500~1000の範囲であることが、熱分解性ポリマーとの相溶性、溶剤への溶解性の観点から好ましい。ついで必要に応じて系内に存在する水を蒸留などにより除去し、さらに触媒をイオン交換樹脂などで除去してもよい。

- (a) 熱分解性ポリマーと(b) シロキサンオリゴマーの混合溶液の調製方法は、 結果として均一な溶液が作成できれば特に限定されず、次の(1)~(3)の方法が 15 例示される。
- (1) (a) 熱分解性ポリマーの溶液と、(b) シロキサンオリゴマーの溶液とをあらかじめ別途調製し、両者を混合する方法。この場合、(b) シロキサンオリゴマーの溶液は、(a) 熱分解性ポリマーの溶液と相溶する溶剤中で直接作製する場合と、(a) 熱分解性ポリマーの溶液と相溶しない溶剤中で合成した後に、公知の溶剤置換20 法により相溶性のある溶剤の溶液とする場合がある。後者は、(a) 熱分解性ポリマーの溶液と相溶する溶剤中ではアルコキシシラン類の加水分解縮合反応が充分に進行しない場合、または縮合物の重合度を制御しにくい場合などに用いられる。
  - (2) アルコキシシラン類を、あらかじめ調製した(a) 熱分解性ポリマーの溶液 に溶解させ、その溶液中で加水分解縮合反応を行う方法。
- 25 (3) (b) シロキサンオリゴマーの溶液をあらかじめ調製し、そこに (a) 熱分 解性ポリマーを添加して溶解する方法。
  - (a) 熱分解性ポリマーと、(b) シロキサンオリゴマーの使用量の比率は、目的に合わせて任意の割合に設定でき、通常、(a) 熱分解性ポリマー100重量部に対

10

15

20

- して(b)シロキサンオリゴマーを10~1000重量部配合するのが好ましく、60~450重量部配合するのがより好ましい。ただし、ここでの(b)シロキサンオリゴマーの重量は、加水分解性基が全て縮合してSi-O-Siの結合を形成したと仮定して計算した値である。
- (b) シロキサンオリゴマーの割合が少なすぎると、得られる低誘電率膜の機械強度が低下する傾向があり、多すぎると得られる膜の比誘電率が増大する傾向がある。
  - (a) 熱分解性ポリマーは官能基を有してもよいが、官能基が(b) シロキサンオリゴマーの加水分解性基及び加水分解により生成するシラノール基と架橋反応するのは好ましくない。(a) 熱分解性ポリマーと、(b) シロキサンオリゴマーの架橋が起きると、加熱により(a) 熱分解性ポリマーを除去した後にシラノール基が生成し、膜の低誘電性、低吸湿性が損なわれる。
  - (a) 熱分解性ポリマーの官能基が、(b) シロキサンオリゴマーの加水分解性基及び加水分解により生成するシラノール基と架橋反応しないで、官能基の極性による相互作用のみが起こる場合には、(a) 熱分解性ポリマーと、(b) シロキサンオリゴマーの相溶性が良くなり、より均質な低誘電率膜が得られる。

本発明における(c)有機溶剤としては、例えば、メタノール、エタノールプロパノール、プタノール等のアルコール系、 $CF_3CH_2OH$ 、 $CF_3CF_2CH_2OH$ 、 $CF_3(CF_2)_3CH_2CH_2OH$ 等の含フッ素アルコール、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸プチル等の酢酸エステル系、 $\gamma$ -ラクトン等のラクトン系、エチレングリコールモノメチルアセテート、エチレングリコールジアセテート等のグリコールアセテート系溶媒、N-メチルー2ーピロリドン等のアミド系溶剤、グリコールエーテル系溶剤などが挙げられる。これらは、単独で又は2種以上を組み合わせて使用される。

これらの(c) 有機溶剤のうちで、(a) 熱分解性ポリマー及び(b) シロキサン 25 オリゴマーの両方を溶解する有機溶剤(c), を用いることが好ましい。

(c) 有機溶剤の使用量は、所望の溶液粘度またはコーティング膜の膜厚などの観点から適宜選択すればよいが、例えば、膜厚 0. 1~5μmのコーティング膜をスピンコート法にて得ようとする場合、組成物の固形分濃度が 1~20重量%となるよう

10

15

20

な量を使用することが好ましい。

本発明の組成物による低誘電率膜の形成は、例えば、組成物を基材に塗布し、(a)熱分解性ポリマーと(b)シロキサンオリゴマーが均一に相溶した複合膜を形成した後、加熱により、(b)シロキサンオリゴマーの縮合反応と(a)熱分解性ポリマーの除去を行う方法により行うことができる。

この方法では、塗布後の加熱工程において、(a) 熱分解性ポリマーが膜中に存在した状態で、(b) シロキサンオリゴマーの縮合が起き、ポリシロキサンのネットワークが形成されることが重要である。ポリシロキサンのネットワーク形成前に、(a) 熱分解性ポリマーの分解が開始する場合には、(a) 熱分解性ポリマーの分解により膜の収縮が起こり、得られる膜の低誘電性が損なわれる可能性がある。

高耐熱で低吸湿な低誘電率膜を得るためには、(b)シロキサンオリゴマーとして非加水分解性基を有するものを用いるのが好ましい。このような(b)シロキサンオリゴマーを、塩基性触媒を用いずに加熱した場合、縮合が始まるのは150℃以上である。また、縮合が進み、ポリシロキサンのネットワークが形成されて膜の構造がほぼ決定するのは250℃以上である。従って、本発明において、高耐熱で低吸湿な低誘電率膜を得るためには、(a)熱分解性ポリマーは、その分解開始温度は150℃以上のものが好ましく、250℃以上のものがより好ましい。かかる観点から(a)熱分解性ポリマーが、空気気流下、30℃以下から昇温速度20℃/minで熱重量分析を行った時、150℃の重量に対する250℃における重量減少が5%未満のポリマーであることが好ましく、また、150℃の重量に対する400℃における重量減少が80%以上であるポリマーであることが好ましい。

また、本発明の方法により低誘電率膜を得るためには、加熱により(a)熱分解性ポリマーを充分に除去することが好ましい。(a)熱分解性ポリマーの除去が不完全な場合には、得られる膜の低誘電性が損なわれやすい。

25 本発明をLSIの層間絶縁膜の形成に適用する場合、適用される加熱温度は配線材料によって異なる。従来のAI配線を用いた場合の加熱温度は400℃~450℃で、将来、Cu配線を用いた場合の加熱温度は380~430℃程度と予想される。従って、Cu配線を用いるLSIに本発明を適用する場合、400℃以下で(a)熱分解

20

25

性ポリマーが充分除去されることが好ましい。また、A 1 配線を用いた場合も、400℃以下で(a)熱分解性ポリマーが除去されることが、加熱温度による誘電率の変化が小さくなるため好ましい。

本発明の組成物の塗布方法としては、スピンコート法、ディッピング法、ポッティング法、ダイコート法、スプレーコート法等が挙げられ、コーティング対象である物品の形状、必要膜厚などから適宜選択すればよい。本発明の組成物を、半導体素子層間絶縁膜に適用する場合、膜厚の面内分布の均一性からスピンコート法が好ましい。多層配線板層間絶縁膜に適用する場合、スピンコート法とともに、より高い液歩留りである方法として、ダイコート法が好ましい。

10 塗膜を形成するためには、(c)有機溶剤を揮発させるため及び(a)熱分解性ポリマーが膜中に存在した状態で(b)シロキサンオリゴマーを縮合させるために、塗布後のベークを実施するのが好ましい。ベーク条件は、塗布膜厚などにより適宜選択すればよいが、溶剤の乾燥のためには、80~200℃、(b)シロキサンオリゴマーの縮合反応のためには200~350℃のベークを行うのが好ましい。また、ベークにはホットプレートを用いるのが好ましい。

(b)シロキサンオリゴマーを充分縮合させ、未反応のアルコキシ基またはシラノール基が残存しないようにし、かつ、(a)熱分解性ポリマーを充分除去するためには、350~500℃の最終硬化が好ましい。未反応のアルコキシ基またはシラノール基は、それ自体が塗膜の比誘電率を上昇させる原因となり、さらには吸水部位となりうることで水による比誘電率の上昇の原因となるために、塗膜中に残存しないことが望ましい。最終硬化は、ホットプレート又は炉を用いて行うのが好ましい。

本組成物より形成した低誘電率膜を半導体素子及び多層配線板の層間絶縁膜として 適用することにより、低誘電率、高絶縁耐圧といった優れた電気特性、信号伝搬遅延 時間の低減などの高性能化を達成できる。また、本発明は、半導体素子にCu配線を 用いることでプロセス温度が低温化した場合にも適用可能である。

本発明における半導体素子とは、ダイオード、トランジスタ、化合物半導体、サーミスタ、バリスタ、サイリスタなどの個別半導体、DRAM(ダイナミック・ランダム・アクセス・メモリ)、SRAM(スタティック・ランダム・アクセス・メモリ)、

EPROM(イレイザブル・プログラマブル・リード・オンリー・メモリ)、マスクROM(マスク・リード・オンリー・メモリ)、EEPROM(エレクトリカル・イレイザブル・プログラマブル・リード・オンリー・メモリ)、フラッシュメモリなどの記憶素子、マイクロプロセッサ、DSP(デジタル・シグナル・プロセッサ)、ASIC(アプリケーション・スペシフィック集積回路)などの理論回路素子、MMIC(モノリシック・マイクロウェーブ集積回路)に代表される化合物半導体などの集積回路素子、混成集積回路(ハイブリッドIC)、発光ダイオード、電荷結合素子などの光電変換素子などを意味する。

本発明における多層配線板とは、MCM (マルチ・チップ・モジュール) などの高 10 密度配線板を含む。本発明の組成物より形成した塗膜を層間絶縁膜として適用することにより、上記と同じく信号伝搬遅延時間の低減などの高性能化と同時に高信頼性化を達成できる。

#### 実施例

15 以下、実施例により本発明を説明する。

#### 製造例1

(モノメチルトリメトキシシラン1モルに対し、テトラメトキシシランを0.4モルの比率で用いて、加水分解縮合反応により得られたシロキサンオリゴマーの溶液①;溶媒γープチロラクトン)

フラスコ内でモノメチルトリメトキシシラン、テトラメトキシシランと溶媒のγーブチロラクトンを混合し、攪拌を行いながら水で希釈した酢酸を滴下し、反応を行った。この時の実験室の気温は23℃で、フラスコの温度制御は行わなかった。添加した水の量は、用いたアルコキシシランのアルコキシ基と等モルで、酢酸はアルコキシシラン1.0モルに対し、0.01モルとした。塗布液の濃度は、不揮発分濃度が20重量%になるように調整し、溶液①を得た。ここで、不揮発分濃度の計算は、シロキサンオリゴマーの加水分解性基が全て縮合してSi-O-Siの結合を形成したと仮定して計算した重量を用いており、以下では全て同じ計算方法を用いる。水と触媒の滴下終了後、2時間程度攪拌を行った後、密閉容器に移して23℃で2日間放置し

た。その時のシロキサンオリゴマーの分子量をGPCで測定した結果、ポリスチレン 換算の重量平均分子量は、1500程度であった。その後は冷凍庫(-18℃)で保 管を行った。

#### 製造例 2

5 (モノメチルトリメトキシシラン1モルに対し、テトラメトキシシランを0.4モルの比率で用いて、加水分解縮合反応により得られたシロキサンオリゴマーの溶液②;溶媒プロピレングリコールモノプロピルエーテル)

同じ方法で、溶媒をプロピレングリコールモノプロピルエーテルとしたシロキサンオリゴマーの溶液②を作製した。得られたシロキサンオリゴマーの分子量をGPCで 測定した結果、ポリスチレン換算の重量平均分子量は、1500程度であった。合成 後は冷凍庫 (-18℃) で保管を行った。

#### 製造例3

10

ポリスチレン換算の重量平均分子量 120,000のポリメチルメタクリレート(P MMA)を $\gamma$  ープチロラクトンに溶解し、ポリマー濃度 10 重量%の溶液③を得た。

#### 15 製造例 4

ポリスチレン換算の重量平均分子量12,800のポリ酢酸ビニル (PVAc)を プロビレングリコールモノプロビルエーテルに溶解し、ポリマー濃度10重量%の溶液(0を得た。

#### 実施例1

20 シロキサンオリゴマー溶液①100gとポリマー溶液③133gを混合し、フラスコ内で1時間攪拌した。その後1日室温放置して溶液Aを得た。この組成物の不揮発分濃度は約14重量%で、シロキサンオリゴマーとポリマーの重量比はポリマー100重量部に対してシロキサンオリゴマー150重量部である。

#### 実施例2

25 シロキサンオリゴマー溶液①100gとポリマー溶液③50gを混合しフラスコ内で1時間攪拌した。その後1日室温放置して溶液Bを得た。この組成物の不揮発分濃度は約17重量%である。シロキサンオリゴマーとポリマーの重量比はポリマー100重量部に対してシロキサンオリゴマー400重量部である。

#### 実施例3

シロキサンオリゴマー溶液②100gとポリマー溶液④133gを混合しフラスコ内で1時間攪拌した。その後1日室温放置して溶液Cを得た。この組成物の不揮発分 濃度は約14重量%で、シロキサンオリゴマーとポリマーの重量比はポリマー100重量部に対してシロキサンオリゴマー150重量部である。

#### 実施例4

5

10

シロキサンオリゴマー溶液②100gとポリマー溶液④50gを混合しフラスコ内で1時間攪拌した。その後1日室温放置して溶液Dを得た。この組成物の不揮発分濃度は約17重量%である。シロキサンオリゴマーとポリマーの重量比はポリマー100重量部に対してシロキサンオリゴマー400重量部である。

比較例1~2、実施例5~8

シロキサンオリゴマー溶液①、シロキサンオリゴマー溶液②、塗布溶液A、塗布溶液B、塗布溶液C及び塗布溶液Dを用いてスピンコート法により塗布膜の形成を行った。基板はペアのシリコンウエハーを用いた。塗布回転数は、最終硬化後(400~15 450℃)の膜厚が、4500~5000A程度になるように各塗布液ごとに調整した。スピンコート後は、ホットプレートで150℃/30sec、250℃/30secのペークを連続して行った。最終硬化は、縦型炉を用いて窒素雰囲気中で、400、425、450℃/1hrの処理を行った。

得られた膜の比誘電率の測定を行った。比誘電率は、直径2mのA1電極を膜上に 20 形成し、A1電極とシリコンウエハーで形成されるキャパシターの容量を測定し、膜 厚とA1電極の面積から計算した。容量測定はインピーダンスアナライザを用いて10kHzで行った。また、膜厚は、エリプソメトリーを用いて測定した。比誘電率の測定 結果を表1に示す。

15

表 1

	使用した 比 誘 電 率			
	溶液	400℃	425℃	450℃
比較例 1	溶液①	3. 1	3. 0	2. 9
比較例 2	溶液②	3. 1	3. 0	2. 9
実施例 5	溶液A	2. 2	2. 1	2. 1
実施例 6	溶液B	2. 6	2. 5	2. 5
実施例 7	溶液C	2. 7	2. 5	2. 3
実施例8	溶液D	3. 0	2. 7	2.6

ポリマー溶液③、④に用いたPMMAとPVAcの熱重量分析を行った。測定条件 5 を以下に示す。

装置:TG-DTA6200 (セイコー電子製)

昇温開始温度:30℃以下

昇温速度: 20℃/min

サンプル量:10mg

10 雰囲気:空気 200ml/min

ポリマーの分解によらない重量減少の影響を避けるため、150℃での重量を基準に、250℃と400℃での重量減少率を測定結果から計算した。その結果を表2に示す。

表 2

15

ポリマー	重量流	或 少 率
4.7.	250℃	400℃
PMMA	0 %	9 3 %
PVAc	0 %	7 1 %

実施例 5 ~ 8 の塗布溶液 A、B、C、Dを用いて作製した膜の比誘電率は、比較例 1 ~ 2 の溶液①、②を用いて同じ温度で作製した膜の比誘電率より小さい結果が得られた。また、シロキサンオリゴマーに対するポリマーの比率が大きい方が比誘電率は低下した。

5 熱分解性ポリマーとしてPMMAを用いた場合(実施例5~6)とPVAcを用いた場合(実施例7~8)を比較すると、PMMAを用いた場合の方が、最終硬化温度による比誘電率の変化が小さい結果が得られた。また、表2に示す熱重量分析の結果から分かるように、PMMAの方が400℃での重量減少が大きい。従って、PVAcよりもPMMAの方がより低温でポリマーが除去されるため、硬化温度による比誘電率の変化が小さくなったと考えられる。

実施例  $5 \sim 8$  で形成した膜の吸湿の影響を確認するため、膜を形成したウエハーを 気温 23  $\mathbb{C}$ 、湿度 40 %に制御された部屋に1週間放置し、再度誘電率の測定を行っ た。その結果、誘電率の増加は最大で0.1 であった。この結果は得られた膜が低吸 湿であることを示している。

- 15 実施例 5 ~ 8 で形成した膜の断面を、電子顕微鏡を用いて倍率 1 0 万倍で観察した。その結果、多孔質膜と呼ばれる膜に見られるような明瞭な孔は観察されないことが分かった。現状では微細な孔を観察する有効な手段は無いが、膜中に孔が形成されているとしても、大きさは 0.0 1 μ m以下と考えられる。従って、得られた膜は、配線幅が 0.1 μ m程度まで微細化した LSIにも適用が可能である。
- 20 実施例5~8では、シロキサンオリゴマー溶液と熱分解性ポリマー溶液を別々に調製してから、両者を混合して塗布液を作製した例を示したが、熱分解性ポリマーを溶解した溶液中でアルコキシシランの加水分解縮合を行い、塗布液を作製しても、得られた結果は同じであった。

#### 25 産業上の利用可能性

本発明の組成物は、400℃程度の加熱で形成可能でかつ、微細な配線を有するL SI等の半導体装置や多層配線板の層間絶縁膜として適用可能な比誘電率が2.5以 下の低誘電率膜を得ることができるものである。 本発明の低誘電率膜の形成方法は、400℃程度の加熱で、微細な配線を有するL SI等の半導体装置や多層配線板の層間絶縁膜として適用可能な比誘電率が2.5以 下の低誘電率膜を歩留まりよく簡便に得ることができるものである。

本発明の低誘電率膜は、微細な配線を有するLSI等の半導体装置や多層配線板の 5 層間絶縁膜として適用可能な比誘電率が2.5以下のものである。

本発明の電子部品は、前記の低誘電率膜を有してなる信号遅延の少ない、高品位、 高信頼性のものである。

15

#### 請求の範囲

- 1. (a) 熱分解性ポリマー及び (b) シロキサンオリゴマーが
- (c) 有機溶剤に均一に溶解してなることを特徴とする組成物。
- 5 2. (b) シロキサンオリゴマーが、非加水分解性の有機基を有する化合物である請求の範囲第1項記載の組成物。
  - 3. (b) シロキサンオリゴマーが、下記一般式 (I):

$$(R^{1})_{m}$$
| Si-(OR<sup>3</sup>)<sub>4-m-n</sub> (I)
| (R<sup>2</sup>)<sub>n</sub>

式中、 $R^1$ 及び $R^2$ は互いに同一または相異なる非加水分解性基を表わし、 $R^3$ は炭素数 $1\sim6$ のアルキル基を表わし、m及びnは、それぞれ、 $0\leq m$ + $n\leq 3$ を満たすように選ばれる $0\sim3$ の整数である、

で示されるアルコキシシラン類の加水分解縮合物である請求の範囲第2項記載の組成物。

- 4. (a) 熱分解性ポリマーが、空気気流下、30℃以下から昇温速度20℃/minで 熱重量分析を行った時の、150℃の重量に対する250℃における重量減少が5% 未満のポリマーである請求の範囲第3項記載の組成物。
- 5. (a) 熱分解性ポリマーが、空気気流下、30℃以下から昇温速度20℃/minで 熱重量分析を行った時の、150℃の重量に対する400℃における重量減少が80% 以上であるポリマーである請求の範囲第4項記載の組成物。
- 6. (a) 熱分解性ポリマーが、フッ素を含まないポリマーである請求の範囲第5項 20 に記載の組成物。
  - 7. (a) 熱分解性ポリマーが、メタクリル系ポリマー又はアクリル系ポリマーである請求の範囲第5項記載の組成物。
  - 8. (a) 熱分解性ポリマー、
  - (b) シロキサンオリゴマー及び
- 25 (c) 前記(a) と(b) の両方が溶解する有機溶剤

から成ることを特徴とする組成物。

- 9. (b) シロキサンオリゴマーが、非加水分解性の有機基を有する化合物である請求の範囲第8項記載の組成物。
- 10. (b) シロキサンオリゴマーが、下記一般式 (I):

$$(R^{1})_{m}$$
  
 $Si - (OR^{3})_{4-m-n}$  (I)  
 $(R^{2})_{n}$ 

式中、 $R^1$ 及び $R^2$ は互いに同一または相異なる非加水分解性基を表わし、  $R^3$ は炭素数  $1\sim 6$  のアルキル基を表わし、m及び n は、それぞれ、 $0\leq m$  +  $n\leq 3$  を満たすように選ばれる  $0\sim 3$  の整数である、

で示されるアルコキシシラン類の加水分解縮合物である請求の範囲第9項記載の組成物。

- 10 11. (a) 熱分解性ポリマーが、空気気流下、30℃以下から昇温速度20℃/minで熱重量分析を行った時の、150℃の重量に対する250℃における重量減少が5% 未満のポリマーである請求の範囲第10項記載の組成物。
  - 12. (a) 熱分解性ポリマーが、空気気流下、30℃以下から昇温速度20℃/minで熱重量分析を行った時の、150℃の重量に対する400℃における重量減少が80%以上であるポリマーである請求の範囲第11項記載の組成物。
  - 13. (a) 熱分解性ポリマーが、フッ素を含まないポリマーである請求の範囲第1 2項記載の組成物。
  - 14. (a) 熱分解性ポリマーが、メタクリル系ポリマー又はアクリル系ポリマーである請求の範囲第12項記載の組成物。
- 20 15. 請求の範囲第1項~第14項のいずれかに記載の組成物を基材に塗布し、熱分解性ポリマーとシロキサンオリゴマーが均一に相溶した複合膜を形成した後、加熱により、シロキサンオリゴマーの縮合反応と熱分解性ポリマーの除去を行うことを特徴とする低誘電率膜の形成方法。
- 16. 請求の範囲第1項~第14項のいずれかに記載の組成物を基材に塗布し、熱分 25 解性ポリマーとシロキサンオリゴマーが均一に相溶した複合膜を形成した後、熱分解

性ポリマーが残存する状態でシロキサンオリゴマーを架橋させる第一の加熱工程と、 熱分解性ポリマーを除去する第二の加熱工程を行うことを特徴とする低誘電率膜の形成方法。

- 17. 第一の加熱工程の温度が80~350℃で、第二の加熱工程の温度が350~ 500℃である請求の範囲第16項記載の低誘電率膜の形成方法。
  - 18. 請求の範囲第15項記載の低誘電率膜の形成方法によって形成される低誘電率膜。
  - 19. 請求の範囲第16項記載の低誘電率膜の形成方法によって形成される低誘電率 膜。
- 10 20. 請求の範囲第17項記載の低誘電率膜の形成方法によって形成される低誘電率 膜。
  - 21. 請求の範囲第18項記載の低誘電率膜を有する電子部品。
  - 22. 請求の範囲第19項記載の低誘電率膜を有する電子部品。
  - 23. 請求の範囲第20項記載の低誘電率膜を有する電子部品。



International application No.
PCT/JP00/06304

CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C08L101/00, C08L83/04, C09D201/00, C09D183/04, Int.Cl7 B05D7/24 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08L1/00-101/16, C09D5/00-201/10, B05D7/00-7/26 Int.Cl7 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) WPI/L DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No. Category\* EP, 767467, A2 (ASAHI GLASS CO LTD), 09 April, 1997 (09.04.97), 1-5,8-12,15-23 X Claims & JP, 09-143420, A, Claims & US, 5905117, A JP, 10-158012, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.),
16 June, 1998 (16.06.98), 1-23 Claims (Family: none) X US, 5700844, A (IBM CORP), 23 December, 1997 (23.12.97), 1-14 Claims Х & JP, 10-025359, A, Claims JP, 11-217458, A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 10 August, 1999 (10.08.99), 1-5,8-12,15-23 (Family: none) Х Claims JP, 5-294609, A (Yoshio IMAI), 09 November, 1993 (09.11.93), 1-20 (Family: none) Claims X See patent family annex. Further documents are listed in the continuation of Box C. later document published after the international filing date or Special categories of cited documents: priority date and not in conflict with the application but cited to document defining the general state of the art which is not "A" understand the principle or theory underlying the invention considered to be of particular relevance document of particular relevance; the claimed invention cannot be earlier document but published on or after the international filing considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document which may throw doubts on priority claim(s) or which is document of particular relevance; the claimed invention cannot be cited to establish the publication date of another citation or other considered to involve an inventive step when the document is special reason (as specified) combined with one or more other such documents, such document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other combination being obvious to a person skilled in the art means document member of the same patent family document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed Date of mailing of the international search report Date of the actual completion of the international search 26 December, 2000 (26.12.00) 08 December, 2000 (08.12.00) Authorized officer Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Telephone No. Facsimile No.



Internati nal application No.

PCT/JP00/06304

Categ ry*	pp. op. alc icicyalit bassages	Relevant to claim N
PX	JP, 2000-44875, A (JSR Corporation), 15 February, 2000 (15.02.00), Claims (Family: none)	1-23
PΧ	JP, 2000-38545, A (JSR Corporation), 08 February, 2000 (08.02.00), Claims (Family: none)	1-23

発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC)) Int. Cl' C08L101/00, C08L83/04, C09D201/00, C09D183/04, B05D7/24

#### 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' C08L1/00-101/16, C09D5/00-201/10, B05D7/00-7/26

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語) WP I/L

関連すると認められる文献

し、 関連すると認められる大脈				
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号		
х	EP, 767467, A2 (ASAHI GLASS CO LT D) 9. 4月. 1997 (09. 04. 97), 特許請求の範囲 & JP, 09-143420, A, 特許請求の範囲 & US, 5905117, A	1-5, 8-12, 15-23		
x	JP, 10-158012, A(旭化成工業株式会社) 16.6 月.1998(16.06.98), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-23		

#### X C欄の続きにも文献が列挙されている。

| パテントファミリーに関する別紙を参照。

- 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「〇」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「丁」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08.12.00

国際調査報告の発送日

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP) 郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員) 藤本 保

9552

電話番号 03-3581-1101 内線 3495

C(続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	US, 5700844, A (IBM CORP) 23. 12月. 1997 (23. 12. 97), 特許請求の範囲 & JP, 10-025359, A, 特許請求の範囲	1-14
X	JP, 11-217458, A (日立化成工業株式会社) 10.8月.1999 (10.08.99), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-5.8-12.15-23
х	JP, 5-294609, A (今井 淑夫) 9. 11月. 1993 (09. 11. 93), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-20
PΧ	JP, 2000-44875, A (ジェイエスアール株式会社) 15. 2月. 2000 (15. 02. 00), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-23
PΧ	JP, 2000-38545, A (ジェイエスアール株式会社) 8. 2月. 2000 (08. 02. 00), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-23
*		
		·

# Translation

# PATENT COOPERATION TREATY PCT

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference FP2353PCT	FOR FURTHER ACTIO	ON SeeNotificat Examination	ionofTransmittalofInternational Preliminary Report (Form PCT/IPEA/416)
nternational application No. PCT/JP00/06304	International filing date (a		Priority date (day/month/year) 16 September 1999 (16.09.99)
nternational Patent Classification (IPC) or C08L 101/00, 83/04, C09D 201	national classification and IP /00, 183/04, B05D 7/24	PC	
Applicant	НІТАСНІ СНЕМІСА	AL CO., LTD.	
This international preliminary exar and is transmitted to the applicant	mination report has been prepactoring to Article 36.	pared by this Inter	national Preliminary Examining Authority
2. This REPORT consists of a total of	of4 sheets, inc	cluding this cover	sheet.
This report is also accomp	DEVEC :	sheets of the desc	ription, claims and/or drawings which have ectifications made before this Authority (see
These annexes consist of a	total ofshe	ets.	
3. This report contains indications re	elating to the following items	::	•
Basis of the repor	t		
II Priority			
III Non-establishmer	nt of opinion with regard to r	novelty, inventive	step and industrial applicability
IV Lack of unity of i			
V Reasoned statement citations and expl	ent under Article 35(2) with I lanations supporting such sta	regard to novelty, itement	inventive step or industrial applicability;
VI Certain documen	ts cited		
VII Certain defects in	n the international application	n	
VIII Certain observati	ions on the international appl	lication	
Date of submission of the demand		Date of completio	
05 April 2001 (05	.04.01)	07 \$	September 2001 (07.09.2001)
Name and mailing address of the IPEA/I	IP	Authorized office	г
Facsimile No.		Telephone No.	

THIS PAGE BLANK (USPTO)

### INTERNATIONAL PRE INARY EXAMINATION REPORT

erna	tional application No.
	PCT/JP00/06304

I. Dasis	s of the report	
1. With	regard to the elements of the international	application:*
$\boxtimes$	the international application as originally	filed
	the description:	
	pages	, as originally filed
		, tab originarly fried , filed with the demand
		, filed with the letter of
	the claims:	
<u> </u>	2000	as originally filed
		, as originally filed , as amended (together with any statement under Article 19
		, as amended (together with any statement under Article 19
		, filed with the letter of
		, med with the fetter of
	the drawings:	
		, as originally filed
		, filed with the demand
		, filed with the letter of
<u> </u>	the sequence listing part of the description:	
		, as originally filed
	pages	, filed with the demand
		, filed with the letter of
3. With prelir	regard to any nucleotide and/or aminor minary examination was carried out on the bacontained in the international application in filed together with the international application furnished subsequently to this Authority in furnished subsequently to this Authority in The statement that the subsequently furniternational application as filed has been furnished.  The amendments have resulted in the cance	for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/ no acid sequence disclosed in the international application, the international basis of the sequence listing: in written form. cation in computer readable form. In computer readable form is identical to the written sequence listing has reded in computer readable form is identical to the written sequence listing has relation of:
	the description, pages	
	the claims, Nos.	
	the drawings, sheets/fig	
. 🔲		e of) the amendments had not been made, since they have been considered to go
and 70	).17).	the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to of annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16
* Any re	placement sheet containing such amendmen	nts must be referred to under item I and annexed to this report.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

#### INTERNATIONAL PR

#### **INARY EXAMINATION REPORT**

inte	rnational application No.
	PCT/JP00/06304

tatement			
Novelty (N)	Claims		YE
	Claims	1-23	NO
Inventive step (IS)	Claims		YE
	Claims	1-23	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-23	YES
	Claims		NO

#### 2. Citations and explanations

The subject matters of claims 1-5, 8-12 and 15-23 do not appear to be novel, since they are described in document 1 [EP, 767467, A2 (Asahi Glass Co., Ltd.), 9 April, 1997 (09.04.97), the claims] and document 2 [JP, 11-217458, A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 10 August, 1999 (10.08.99), the claims] respectively cited in the ISR.

The subject matters of claims 1-23 do not appear to be novel, since they are described in document 3 [JP, 10-158012, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 16 June, 1998 (16.06.98), the claims] cited in the ISR.

The subject matters of claims 1-14 do not appear to be novel, since they are described in document 4 [US, 5700844, A (IBM Corp.), 23 December, 1997 (23.12.97), the claims] cited in the ISR.

The subject matters of claims 1-20 do not appear to be novel, since they are described in document 5 [JP, 5-294609, A (Toshio Imai), 9 November, 1993 (09.11.93), the claims] cited in the ISR.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Date of written disclosure

#### VI. Certain documents cited

Application No. Patent No.	Publication date (day/month/year)	Filing date (day/month/year)	Priority date (valid claim) (day/month/year)
JP 200-44875 A [E,X]	15 February 2000 (15.02.2000)	17 May 1999 (17.05.1999)	18 May 1998 (18.05.1998)
JP 2000-38545 A [E,X]	08 February 2000 (08.02.2000)	17 May 1999 (17.05.1999)	18 May 1998 (18.05.1998)

2. Non-written disclosures (Rule 70.9)	

Kind of non-written disclosure	Date of non-written disclosure	referring to non-written disclosure
	(day/month/year)	(day/month/year)

THIS PAGE BLANK (USPTO)